

## МОДИФИКАЦИЯ МЕТОДА ФУНКЦИОНАЛА ПЛОТНОСТИ ДЛЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ПЛОТНОСТЕЙ, РАССЧИТЫВАЕМЫХ ИЗ ПЕРВЫХ ПРИНЦИПОВ (AB INITIO CALCULATION)

Изучение и прогнозирование свойств сложных реальных систем, например, реакторных материалов, невозможно без моделирования этих систем на микроскопическом (молекулярном) уровне. Наиболее точные результаты в данной области дают расчеты из первых принципов, квантово-химическими методами.

Разработанная ранее программа для расчета межчастичных потенциалов взаимодействия методом функционала плотности (МФП), уже применявшаяся для систем одно- и двухзарядных ионов, а также для диоксида урана, была модифицирована с использованием расчетов из первых принципов.

Статистическая модель электронной плотности, требующая минимизации функционала энергии по варьируемым параметрам электронной плотности, была заменена электронной плотностью на основе волновых функций, являющихся точным решением уравнения Дирака, релятивистского аналога уравнения Шредингера.

Модель гармонических осцилляторов Друда, применявшаяся ранее для расчета дальнедействующих индукционной и дисперсионных составляющих, требовавшая знания поляризуемостей частиц и дававшая некорректные результаты на малых межчастичных расстояниях для «тяжелых» частиц с большим числом электронов, была заменена прямым расчетом дисперсионного (диполь-дипольного) взаимодействия на основе МФП. В качестве основной модели теперь используется метод функционала плотности в приближениях local density approximation (LDA) и generalized gradient approximation (GGA).

С использованием модернизированного пакета программ MFP, реализующего описанный выше метод расчета, получены потенциалы взаимодействия атомов инертных газов (He, Ne, Ar, Kr, Xe) с ионами в щелочно-галогенидных кристаллах и некоторых суперионных кристаллах структуры флюорита. Проведено сравнение с экспериментальными потенциалами, восстановленными из подвижности ионов в газовой фазе, из экспериментов с молекулярными пучками, а также по данным диффузии и растворимости газов в несовершенных ионных кристаллах. Показано, что рассчитываемые потенциалы количественно совпадают с экспериментальными в области положительных энергий взаимодействия, превышающих 0.1 эВ. Благодаря использованию новой процедуры расчета дисперсионного взаимодействия, для многих пар количественное (с точностью до погрешностей измерения) совпадение с экспериментом достигнуто и на средних расстояниях, в области нуля потенциала.

Сравнение с более строгими квантово-химическими методами (Dmol) показало, что разработанный метод практически не уступает им в точности, при существенно большей скорости вычислений.